

## 明 細 書

### 磁性基材の積層体およびその製造方法

#### 技術分野

- [0001] 本発明は、高分子化合物が付与された磁性金属薄板およびその積層体およびその製造方法に関する。

#### 背景技術

- [0002] 従来、磁性金属材料を薄板として使用する場合は、単板の薄板を複数枚積層して用いられてきた。そのための方法としては、たとえば、磁性金属材料として非晶質金属薄帯を用いるような場合には、非晶質金属薄帯の厚さが10〜50  $\mu$ m程度の厚さであるため、その表面に特定の接着剤を均一に塗布したり、接着剤に含浸させたりして、これを積層することが行われていた。特開昭58-175654(特許文献2)には、高耐熱性高分子化合物を主成分とする接着剤を塗布した非晶質金属薄帯を積み重ね、圧下ロールで圧着し、その後に加熱接着することを特徴とする積層体の製造方法について記載されている。しかしながら、樹脂を塗布して積層する際、膜厚のみを規定し、接着された状態に関して特に記載がない。
- [0003] また従来技術において塗布された樹脂は、磁性金属薄板間の渦電流を抑制するため、積極的に電氣的絶縁を図り交流の電氣的特性を向上するように用いられていた。たとえば、米国特許4201837(特許文献2)には、高分子化合物を用いる好ましい態様として、交流の電氣的特性を向上するように樹脂を用いられるとの記述があるが、このことは、高分子化合物により金属層間を絶縁することを意味している。さらに、WO03/060175号公報(特許文献3)には、非晶質金属と高分子化合物とからなる磁性基材の積層体について記載されているが、その具体的使用時における発熱性等についての課題については記載されていない。
- [0004] しかし、これらいずれの方法によっても、積極的に電氣的絶縁を図ろうとすると、渦電流を抑制するため金属薄板同士が接触しないように高分子化合物層の膜厚を厚くすると、積層体中に占める磁性金属の体積の占める割合(占積率)が低くなる。また、積層体を磁気コアとして用いる場合には、鉄損により発熱するが、樹脂は一般に金属

よりも熱伝導率が10～100倍悪いので、樹脂層を介しての熱の放出という点で不利となり、樹脂層が厚くなるにつれて積層体に熱がこもりやすくなるという問題があった。この問題は、従来技術の磁性積層体を磁気コアとして用いる場合に、定格電力が低くなるので、小型化、高出力化する上で障害となっていた。

特許文献1:特開昭58-175654

特許文献2:米国特許4201837号公報

特許文献3:WO03/060175号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0005] 本発明は、磁性金属薄板と樹脂を積層した磁性基材を磁気コアとして用いる場合に鑑み、必要な絶縁を行いつつ占積率の低下を防止し、低発熱性の磁性基材を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

- [0006] 本発明者らは、樹脂塗膜厚と積層方法を適切に制御し、JIS H 0505に規定される体積抵抗率を $0.1 \sim 10^8 \Omega \text{cm}$ 未満の範囲とすることにより、占積率を低下させ放熱性を改善することが可能であることを見出した。その結果、磁気コア等の応用部品、装置の小型化、高出力化が可能となることを見出し、本発明に至った。
- [0007] すなわち、本発明は高分子化合物層と磁性金属薄板とからなる磁性基材の積層体であり、金属同士が薄板間で部分的に接触し、積層体の接着面に垂直な方向のJIS H 0505に定義される体積抵抗率が $0.1 \sim 10^8 \Omega \text{cm}$ 未満であることを特徴とする磁性基材の積層体を提供する。
- [0008] また、前記高分子化合物層が前記磁性金属薄板の積層接着面の面積の50%以上を覆い、積層体の接着面に垂直な方向のJIS H 0505に定義される体積抵抗率が $1 \Omega \text{cm}$ 以上 $10^6 \Omega \text{cm}$ 以下であることは、本発明の望ましい態様の1つである。
- [0009] さらに、本発明の磁性基材の積層体に用いられる磁性基材は、2種類以上の磁性金属薄板が用いられていても良い。
- [0010] また、前記磁性金属薄板が非晶質金属、ナノ結晶磁性金属、又は珪素鋼板から選ばれる少なくとも2種以上の金属であることは本発明の好ましい態様の1つであり、前

記磁性金属薄板が非晶質金属と珪素鋼板であることはさらに好ましい態様の1つである。

[0011] 本発明の磁性基材の積層体は、高分子化合物層と磁性金属薄板からなる磁性基材を2枚以上積み重ね、金属同士が薄板間で部分的に接触するように0.2〜100MPaで加圧しすることにより製造することができる。

[0012] また、磁性金属薄板上に高分子化合物を該磁性金属薄板の面積の50%以上塗布した後、乾燥し、得られた磁性金属薄板を打ち抜きし、積み重ねてかしめなどにより塑性変形を行い、これを0.2〜100MPaで加圧しながら加熱して積層一体化して磁性基材の積層体の製造することは、本発明の好ましい態様の1つである。

[0013] 本発明の磁性基材の積層体は、トランス、インダクタ、アンテナのいずれかに用いることができる。

[0014] また、本発明の磁性基材の積層体は、モータまたは発電機のステータまたはロータの磁気コア材料に用いられていることができる。

#### 発明の効果

[0015] 本発明の方法により、体積抵抗率を $0.1 \sim 10^8 \Omega \text{cm}$ 未満の範囲とすることで、高い占積率と高い熱伝導率を有する磁性積層体となり、本発明の磁性積層体からなる温度上昇の低い磁気コアを実現することが可能となった。

#### 発明を実施するための最良の形態

[0016] (磁性金属薄板)

本発明に用いられる磁性金属薄板は、公知の金属磁性体であれば用いることができる。具体的には、珪素の含有量が3%から6.5%の実用化されている珪素鋼板、パーマロイ、ナノ結晶金属磁性材料、非晶質金属磁性材料を挙げることができる。特に発熱が低く、低損失材料である材料が好ましく、非晶質金属磁性材料、ナノ結晶金属磁性材料、が好適に用いられる。

[0017] 本発明において「磁性金属薄板」とは、珪素鋼板やパーマロイに代表される磁性金属材料を薄板状にしたものをさすが、アモルファス金属薄帯もしくはナノ結晶磁性金属薄帯の意味に用いることがある。また、本発明に用いられる「磁性基材」とは、高分子化合物と上記磁性金属薄板とを積層したものをいう。

[0018] 本発明において、「珪素鋼板」とは、珪素の含有量が3%から6.5%のものが用いられる。このような珪素鋼板の例としては、具体的には方向性電磁鋼板や、無方向性電磁鋼板などがあるが、特に新日鉄(株)が製品化している無方向性電磁鋼板(ハイライトコア、薄手ハイライトコア、高張力ハイライトコア、ホームコア、セミコア)や、JFEスチール(株)が製品化しているFe-Si中の珪素含有量が6.5%のスーパーEコアなどが好ましく用いられる。

[0019] (高分子化合物)

本発明に用いられる高分子化合物は、公知のいわゆる樹脂と呼ばれるものが用いられる。本発明においては、「高分子化合物」のことを「樹脂」と記載したり、「樹脂」のことを「高分子化合物」と記載する場合があります、特に断りの無い限り、両者は同一のものを指している。特に金属磁性材料の磁気特性向上に200℃以上の熱処理が必要な場合は、弾性率の低い耐熱樹脂を複合することが、優れた性能を発揮する上で効果的である。また珪素鋼板などの材料は、非晶質金属磁性材料やナノ結晶金属磁性材料に比べて損失が大きく、発熱温度が高くなるため、モータやトランス等のパワーエレクトロニクス用途に用いる場合は、耐熱樹脂を適用することで、定格温度を向上することができ、定格出力の向上や機器の小型化につなげることができる。本発明に用いられる高分子化合物は、非晶質金属薄帯やナノ結晶金属磁性薄帯の磁気特性を向上させる最適熱処理温度で熱処理される場合があるので、当該熱処理温度で熱分解の少ない材料を選定することが必要になる。例えば非晶質金属薄帯の熱処理温度は、非晶質金属薄帯を構成する組成および目的とする磁気特性により異なるが、良好な磁気特性を向上させる温度は概ね200〜700℃の範囲にあり、さらに好ましくは300℃〜600℃の範囲である。

[0020] 本発明に用いられる高分子化合物としては、熱可塑性、非熱可塑性、熱硬化性樹脂を挙げることができる。中でも熱可塑性樹脂を用いるのが好ましい。

[0021] 本発明に用いられる高分子化合物としては、前処理として120℃で4時間乾燥を施し、その後、窒素雰囲気下、300℃で2時間保持した際の重量減少量を、DTA-TGを用いて測定され、通常1%以下、好ましくは0.3%以下であるものが用いられる。具体的な樹脂としては、ポリイミド系樹脂、珪素含有樹脂、ケトン系樹脂、ポリアミド系樹

脂、液晶ポリマー、ニトリル系樹脂、チオエーテル系樹脂、ポリエステル系樹脂、アリレート系樹脂、サルホン系樹脂、イミド系樹脂、アミドイミド系樹脂を挙げることができる。これらのうちポリイミド系樹脂、スルホン系樹脂、アミドイミド系樹脂を用いるのが好ましい。

[0022] また本発明において200℃以上の耐熱性を必要としない場合、これに限定されないが、本発明に用いられる熱可塑性樹脂を具体的に挙げるとすれば、ポリエーテルサルホン、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトン、ポリエチレンテレフタレート、ナイロン、ポリブチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンスルフィド、ポリサルホン、ポリアミド、ポリアミドイミド、ポリ乳酸、ポリエチレン、ポリプロピレン等々あるが、この中でも、望ましくは、ポリエーテルサルホン、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンポリエチレン、ポリプロピレン、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ゴム系樹脂(クロロプレンゴム、シリコンゴム)等を用いることができる。

[0023] また本発明の樹脂層の厚みは $0.1\mu\text{m}$ ～ $1\text{mm}$ の範囲が好ましく、さらに好ましくは $1\mu\text{m}$ ～ $10\mu\text{m}$ が良く、さらに好ましくは $2\mu\text{m}$ ～ $6\mu\text{m}$ が良い。

[0024] (体積抵抗率)

本発明では鋭意研究の結果、磁性基材の積層体を磁気コア等の用途で用いる場合、定格電力の向上に寄与する熱伝導率を左右する因子として、積層体の接着面に垂直な方向すな

わち、磁性基材の積層体の高分子化合物面に垂直な方向のJIS H 0505で規定される体積抵抗率が重要な相関因子であることが明らかになった。通常、磁性金属薄板と高分子化合物による磁性基材の積層体において、絶縁体である高分子化合物によって磁性金属薄板が完全に絶縁されていれば、体積抵抗率は $10^8\Omega\text{cm}$ 以上であり、また、絶縁が不十分とされる状態であれば $10^{-8}\Omega\text{cm}$ 以下であるとされている。本発明においては、体積抵抗率が $0.1\sim 10^8\Omega\text{cm}$ 未満、好ましくは $10^3\Omega\text{cm}\sim 10^8\Omega\text{cm}$ の時に、熱伝導率が高くなるので好ましい。本発明者らは特定の理論にこだわっているわけではないが、かかる体積抵抗率の変化は、金属薄板上の微細な凹凸同士がわずかに接触することによって電氣的導通点が生成するためと考えている。

[0025] 電氣的導通点は、磁性金属薄板上の微細な凹凸がわずかに接触することにより生

成すると考えられる。積層一体化および電氣的導通工程は、磁性金属薄板間において、樹脂が流動する状態で加圧保持して一体化することにより行う。印加される圧力は、磁性金属薄板の表面粗さや用いる樹脂の種類、樹脂の厚みにより最適な条件が異なるが、通常、0.2〜100MPaの圧力が用いられ、より好ましくは1〜100MPaである。

- [0026] たとえば、熱可塑性樹脂を用いた場合は、加熱後、冷却過程においても流動状態を保っている間は加圧状態が好ましい。たとえば、熱硬化性樹脂を使用する場合、所望の熱硬化が終了するまでは加圧することが好ましい。加圧によって効果的に金属薄板間が接触し、効果的に体積抵抗率を低減できる。特に熱可塑性樹脂の体積抵抗率を低減する場合、熱可塑性樹脂のガラス転移温度以上の温度域で通常0.2〜100MPaで圧力が用いられ、好ましくは2MPa〜30MPaの大きさの圧力を印加することにより、効果的に金属薄板間から樹脂を押し出し金属薄板同士の接触を図ることができる。また、金属薄板間の電氣的導通を図る方法としては、樹脂の硬化収縮や表面張力を使い電氣的導通を図ることも可能である。このようにして得られた磁性金属の積層体は本発明の体積抵抗率を有する。

[0027] （塗工方法）

本発明で用いられる塗工方法には、特に制限は無く公知のものが用いられる。さらに具体的には、磁性金属薄板の原反に公知のロールコート、グラビアコートなどのコーティング装置を用い、薄板上に有機溶剤に樹脂を溶解させた樹脂ワニスにより塗膜を作り、これを乾燥させて非晶質金属薄板に高分子化合物を付与する方法で磁性基材を作製することができる。通常、コーティング厚は用いられる磁性金属薄板の表面の粗さにより調節されるべきであって、本発明の、上記で述べた体積抵抗率を実現するためには、磁性金属薄板間で部分に接触していることが必要であるが、磁性基材の強度の点からも磁性金属薄板上にはより多くの高分子化合物が塗工されることが望ましいので、磁性金属薄板の少なくとも50%以上、好ましくは90%以上、さらに好ましくは95%以上の面積が覆われているように塗工すべきである。

- [0028] またコーティングするワニス塗膜厚は使用する磁性金属薄板の表面粗さにもよるが、通常、0.1  $\mu\text{m}$  から1mm程度に塗膜される。鉄損を減らすためには、占積率が

きいと鉄損が低減できるため、ワニスの塗膜厚はより薄く、 $0.1\mu\text{m}$ ～ $10\mu\text{m}$ 程度にすることが望ましい。また樹脂ワニスの粘度は $0.005$ ～ $200\text{Pa}\cdot\text{s}$ の濃度範囲が好ましい。さらには、 $0.01$ ～ $50\text{Pa}\cdot\text{s}$ の濃度範囲が好ましく、より好ましくは、 $0.05$ ～ $5\text{Pa}\cdot\text{s}$ の範囲にある方が良い。ここでいう樹脂ワニスとは樹脂もしくは樹脂の前駆体が有機溶剤に分散または溶解した状態の液体を指す。

[0029] (打ち抜き工程およびかしめ工程)

本発明の樹脂を塗工した磁性金属薄板、すなわち磁性基材は、打ち抜きして、それを所望の枚数を積み重ねて、塑性変形により接合して積層体にすることができる。塑性変形により接合する方法としてかしめを用いることができる。この工程は、まず公知の磁性金属

薄板の形状加工技術であるプレス打ち抜き加工により所望の形状にカットし、次に、材料の一部をつぶして二つ以上の金属薄板を接合する公知のかしめ加工により、複数枚の磁性金属薄板を接合し、積層体とする。かしめ工程として、ダボかしめ工程を用いることが好ましく用いられる。しかしながら、打ち抜く磁性金属薄板材料が数十 $\mu\text{m}$ ～数百 $\mu\text{m}$ と薄い場合はかしめ加工のみでは十分な接合強度を達成することが難しいため、本発明の加圧しながらの加熱一体化工程により樹脂接着する。

[0030] (積層一体化)

本発明において「積層一体化」とは、高分子化合物層と磁性金属薄板とからなる磁性基材の積層体を所望の枚数を積み重ねた後に、加圧しながら加熱して高分子化合物同士を融着させて磁性基材同士を結合させることを意味する。

[0031] 金属磁性薄板に高分子化合物を付与した磁性基材の積層体を作製する場合、例えば熱プレスや熱ロールなどを用いることにより積層一体化することができる。加圧時の温度は高分子化合物の種類により異なるが、本発明に用いられる高分子化合物のガラス転移温度以上で軟化もしくは熔融する温度近傍で積層一体化することが好ましい。高分子化合物は、磁性金属薄板上塗布後、溶媒は除去される。その後、磁性金属薄板を複数枚積層させて、積層一体化すると同時に電氣的導通点の生成工程を行う。

[0032] (熱処理方法)

本発明の磁性金属薄板は、磁性金属薄板が熱処理することにより鉄損や透磁率などの磁気的特性が改善できる場合、熱処理することが好ましい。このとき、塗布した高分子化合物が、熱処理により金属間の接着力を失わない範囲で熱処理することが重要である。このような熱処理することで著しく磁気特性が向上する磁性金属薄板としては、非晶質磁性金属薄帯や、ナノ結晶金属磁性薄帯材料などがある。磁気特性を向上させるための熱処理温度としては通常、不活性ガス雰囲気下もしくは真空中で行われ、良好な磁気特性を向上させる温度は概ね300〜700℃であり、好ましくは350℃から600℃で行わる。また、目的に応じて磁場中で行っても良い。

### 実施例

[0033] 占積率は次式で定義する式により計算した。

[0034] 
$$(\text{占積率}(\%)) = (((\text{非晶質金属薄帯厚さ}) \times (\text{積層枚数})) / (\text{積層後の積層体厚さ})) \times 100$$

体積抵抗率はJIS H0505に準拠し導出した。

[0035] 熱伝導率はJIS R 1611に準拠して求めた。

[0036] (実施例1)磁性金属薄板として、ハネウエル社製、Metglas:2605TCA(商品名)幅約142mm, 厚み約25 $\mu$ mであるFe<sub>78</sub>B<sub>13</sub>Si<sub>9</sub>(原子%)の組成を持つ非晶質金属薄帯を使用した。この薄帯の片面全面にE型粘度計で測定したときに、25℃で、約0.3Pa・sの粘度のポリアミド酸溶液をロールコートで塗工し、140℃で乾燥後、260℃でキュアし、非晶質金属薄帯の片面に約4ミクロンの耐熱樹脂(ポリイミド樹脂)を付与した。ポリイミド樹脂は、3, 3'-ジアミノジフェニルエーテルと3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物を1:0.98の割合で混合し、ジメチルアセトアミド溶媒中で室温にて縮重合して得られたものである。通常は、ポリアミド酸としてジアセチルアミド溶液として用いた。

[0037] さらに樹脂をコートして得た磁性基材を50mm角に切断し、50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分間加圧し積層一体化した後、370℃、1MPaで2hr熱処理した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

[0038] なお、本発明の体積抵抗率はJIS H0505に準拠し導出した。体積抵抗率を測定



するサンプル形状は、 $40 \times 40 \times 0.7$  (mm)の直方体形状とした。抵抗率の測定には、ヒューレットパッカード社製HP4284Aを用い、測定サンプルの上下面にプローブを接触させて直流抵抗値を測定し、測定した抵抗値とサンプル形状から、JIS H0505の平均断面積法を用いて導出した。

[0039] 温度上昇の測定は、交番磁界を印加して行った。すなわち、本例の磁性基材を、外径40mm内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜き、これを50枚積層した後、窒素雰囲気中で $270^{\circ}\text{C}$ 、10MPaで30分、熱プレス機で加圧し積層一体化し、さらに $370^{\circ}\text{C}$ 、1MPaで2hr熱処理をした。被覆銅線を1次側25ターン、2次側25ターン施し、交流アンプにより1次巻線に1kHzの電流を印加し、1Tの交番磁界を印加されるようにした。K型熱電対により温度上昇(表面温度と室温との差)を測定した。

[0040] 結果を表1に示す。

[0041] (実施例2)

磁性金薄板として、ハネウエル社製、Metglas:2714A(商品名)、幅約50mm、厚み約 $15\mu\text{m}$ である $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Ni}_1(\text{BSi})_{29}$ (原子%)の組成を持つ非晶質金属薄帯を使用した。この薄帯の片面全面にE型粘度計で測定したときに、 $25^{\circ}\text{C}$ で、約 $0.3\text{Pa}\cdot\text{s}$ の粘度のポリアミド酸溶液をロールコートで塗工し、 $140^{\circ}\text{C}$ で乾燥後、 $260^{\circ}\text{C}$ でキュアし、非晶質金属薄帯の片面に約4ミクロンの耐熱樹脂(ポリアミド樹脂)を付与した。ポリアミド樹脂は、3,3'-ジアミノジフェニルエーテルと3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物を1:0.98の割合で混合し、ジメチルアセトアミド溶媒中で室温にて縮重合して得られたものである。通常は、ポリアミド酸としてジアセチルアミド溶液として用いた。

[0042] さらに樹脂をコートして得た磁性基材を30mm角に切断し、50枚積み重ね、窒素雰囲気中で $270^{\circ}\text{C}$ で10MPa、30分間加圧し積層一体化した後、 $400^{\circ}\text{C}$ 、1MPaで2hr熱処理した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

[0043] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、本例の磁性基材を、外径40mm内径25mmのトロイダル形状に金型を用いて打ち抜いた。このトロイダルを50枚を積み重ねた後、窒素雰囲気中で $270^{\circ}\text{C}$ 、10MPaで30分、熱プレス機で加圧し積

層一体化した。さらに、400℃、1MPaで2hr熱処理した。被覆銅線を1次側25ターン、2次側25ターン施し、交流アンプにより1kHzの電流を印加し、0.3Tの交番磁界を印加した。K型熱電対により温度上昇(表面温度と室温との差)を測定した。

[0044] 結果を表1に示す。

[0045] (実施例3)

磁性金属薄板として、日立金属(株)製、ファインメット(商品名)、FT-3、幅約35mm、厚み約18 $\mu$ mであるFe、Cu、Nb、Si、Bの元素組成を持つナノ結晶磁性金属薄帯を使用した。実施例1と同様の樹脂をコートして磁性基材とし、それを30mm角に切断し、50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分加圧し積層一体化した後、550℃、1MPaで1.5hr熱処理した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

[0046] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、本例の磁性基材から、外径40mm、内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜いた。このトロイダルを50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分、熱プレス機で加圧し積層一体化した。さらに、550℃、1MPaで2hr熱処理した。被覆銅線を1次側25ターン、2次側25ターン施し、交流アンプにより1kHzの電流を印加し、0.3Tの交番磁界を印加した。熱電対により温度上昇(表面温度と室温との差)を測定した。

[0047] 結果を表1に示す。

[0048] (実施例4)

磁性金属薄板として、新日本製鉄、薄手ハイライトコア(商品名)、20HTH1500幅約150mm、厚み約200 $\mu$ mである珪素鋼板を使用した。実施例1と同様に樹脂をコートして磁性基材とし、30mm角に切断し、5枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分加圧し積層一体化した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

[0049] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、本例の磁性基材から、外径40mm内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜いた。このトロイダルを5枚積

み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分間、熱プレス機で加圧し積層一体化した。被覆銅線を1次側25ターン、2次側25ターン施し、交流アンプにより1kHzの電流を印加し、0.3Tの交番磁界を印加した。熱電対により温度上昇(表面温度と室温との差)を測定した。

[0050] 結果を表1に示す。

[0051] (実施例5)磁性金属薄板として、ハネウェル社製、Metglas:2605TCA(商品名)幅約142mm, 厚み約25 $\mu$ mであるFe<sub>78</sub>B<sub>13</sub>Si<sub>9</sub>(原子%)の組成を持つ非晶質金属薄帯を使用した。エポキシ樹脂としては、YDB-530(東都化成)90部、YDCN-704(東都化成)10部、硬化剤としてジシアンジアミド3部、硬化促進剤イミダゾール2E4MZ 0.1部、溶剤メチルソロソルブ30部を混合し、メチルエチルケトンを適量加えて固形分50%のワニス調製した。このワニスを磁性金属薄帯に塗布し、150℃、20秒で半硬化させた磁性基材を作製した。樹脂厚みは、硬化後4 $\mu$ mになるよう調製した。半硬化させた状態の樹脂を付与して得た磁性基材を50mm角に切断し、50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分加圧し積層一体化した後、150℃、10MPaで2hr硬化処理を実施した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

[0052] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、積層板と同様の方法で金属薄帯に半硬化させた樹脂を塗布した材料から、外径40mm内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜いた。このトロイダルを50枚積層した後、150℃、10MPaで熱プレス機で加圧し積層一体化した。被覆銅線を1次側25ターン、2次側25ターン施し、交流アンプにより1次巻線に1kHzの電流を印加し、1Tの交番磁界を印加されるようにした。K型熱電対により温度上昇(表面温度と室温との差)を測定した。

[0053] 結果を表1に示す。

[0054] (実施例6)

磁性金属薄板として、新日本製鉄、薄手ハイライトコア(商品名)、20HTH1500幅約150mm, 厚み約200 $\mu$ mである珪素鋼板を使用した。実施例5と同様に樹脂を6 $\mu$ mコートして、磁性基材を得た。

- [0055] さらに、前記樹脂を半硬化させた磁性基材を30mm角に切断し、5枚積み重ねた後、150℃、10MPaで30分加圧し積層一体化した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。
- [0056] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、本例の磁性基材を外径40mm内径25mmのトロイダル形状に金型を用いて打ち抜いた。このトロイダルを5枚積み重ねた後、150℃、10MPaで30分間、熱プレス機で加圧し積層一体化した。被覆銅線を1次側25ターン、2次側25ターン施し、交流アンプにより1kHzの電流を印加し、0.3Tの交番磁界を印加した。熱電対により温度上昇（表面温度と室温との差）を測定した。
- [0057] 結果を表1に示す。
- [0058] （実施例7）磁性金属薄板として、実施例1に使用したハネウエル社製、Metglas:2605TCA（商品名）幅約142mm、厚み約25 $\mu$ mを用い、実施例1と同様の方法で、4ミクロンの耐熱樹脂（ポリイミド樹脂）を付与して磁性基材を得た。
- [0059] さらに磁性基材を50mm角に切断し、50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃10MPaで30分加圧し積層一体化した後、370℃15MPaで2hr熱処理した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。
- [0060] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、本例の磁性基材から、外径40mm内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜いた。このトロイダルを50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃10MPaで30分、熱プレス機で加圧し積層一体化した。さらに、370℃15MPaで2hr熱処理した。
- 実施例1と同様に温度上昇を測定した。
- [0061] 結果を表1に示す。
- [0062] （実施例8）磁性金属薄板として、実施例1に使用したハネウエル社製、Metglas:2605TCA（商品名）幅約142mm、厚み約25 $\mu$ mを用い、実施例1と同様の方法で、6ミクロンの耐熱樹脂（ポリイミド樹脂）を付与して磁性基材を得た。
- [0063] さらに磁性基材を50mm角に切断し、50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270

℃、10MPaで30分間加圧し積層一体化した後、450℃100MPaで2hr熱処理した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

[0064] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、本例の磁性基材から、外径40mm内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜いた。このトロイダルを50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分間、熱プレス機で加圧し積層一体化した。さらに、450℃100MPaで2hr熱処理した。実施例1と同様に温度上昇を測定した。

[0065] 結果を表1に示す。

[0066] (実施例9)

磁性金属薄板として、ハネウエル社製、Metglas:2605TCA(商品名)、幅約213mm、厚み約25 $\mu$ mであるFe<sub>78</sub>Si<sub>9</sub>B<sub>13</sub>(原子%)の組成を持つ非晶質金属薄帯を使用した。

[0067] 3, 3'-ジアミノジフェニルエーテルと3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物を1:0.98の割合でジメチルアセトアミド溶媒中で室温にて縮重合し、ポリアミド酸溶液(粘度0.3MPa、室温、E型粘度計使用)とした。このポリアミド酸溶液を、薄帯および、珪素鋼板(新日本製鉄(株)製:薄手ハイライトコア、20HTH1500(幅200mm、厚み200 $\mu$ m))のそれぞれの片面に付与し、140℃で乾燥後、260℃でポリイミド化し、非晶質金属薄帯の片面には厚さ約4 $\mu$ mの耐熱樹脂(ポリイミド樹脂)を付与して磁性基材とした。

[0068] 次に、この磁性基材を50mm角に切断後、交互に10層積み重ねて熱ロールと加圧ロールで大気中260℃、30分、5MPaで圧着して、積層体を作製した。さらに磁気特性を発現するため、コンベア炉で、370℃(1MPa)で2hr、窒素雰囲気中で熱処理し、磁性基材とした。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

[0069] 結果を表1に示す。

[0070] (実施例10)

磁性金属薄板として、非晶質金属薄帯(ハネウエル社製、Metglas(登録商標))

:2605TCA、幅約213mm、厚み約25  $\mu$ m  $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$  (at %)の組成を持つ非晶質金属薄帯)を使用した。この薄帯の両面全面に約0

、3Pa・sの粘度のポリアミド酸溶液を付与し、150℃で溶媒を揮発させた後、250℃でポリアミド樹脂とし、磁性金属薄板の片面に厚さ約4ミクロンの高分子化合物(ポリアミド樹脂)を付与した非晶質金属薄帯を作製した。高分子化合物として、ジアミンに3

、3'-ジアミノジフェニルエーテル、テトラカルボン酸二無水物にビス(3、4-ジカルボキシフェニル)エーテル二無水物により得られるポリアミドの前駆体であるポリアミド酸を用い、ジメチルアセトアミドの溶媒に溶解して非晶質金属薄帯上に塗布し、非晶質金属薄帯上で250℃で加熱してことにより、ポリアミド樹脂とし、磁性基材を得た。

[0071] この磁性基材を、50mm角の短冊形状に打ち抜きし、積み重ねてかしめにより積層体を作製した。さらに270℃、5MPaで、30分間、加熱し非晶質金属薄帯のポリアミド樹脂層を熔融させ、金属薄帯同士を接着させて積層一体化させた。この積層体の占積率は90%であった。さらに積層体を370℃1MPaで2時間の熱処理を行った。

[0072] 結果を表1に示す。

[0073] (比較例1)磁性金属薄板として、ハネウエル社製、Metglas:2605TCA(商品名)、幅約142mm、厚み約25  $\mu$ mである $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ (原子%)の組成を持つ非晶質金属薄帯を使用した。この薄帯の片面全面にE型粘度計で測定したときに、25℃で、約0.3Pa・sの粘度のポリアミド酸溶液をロールコートで塗工し、140℃で乾燥後、260℃でキュアし、非晶質金属薄帯の片面に約6ミクロンの耐熱樹脂(ポリアミド樹脂)を付与した。ポリアミド樹脂は、3、3'-ジアミノジフェニルエーテルと3、3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物を1:0.98の割合で混合し、ジメチルアセトアミド溶媒中で室温にて縮重合して得られたものである。通常は、ポリアミド酸としてジアセチルアミド溶液として用いた。

[0074] さらに樹脂をコートして得た磁性基材を50mm角に切断し、50枚積み重ねた後、窒素雰囲気中で、370℃、0.05MPaで2hr熱処理した以外は、実施例1と同様に処理をした。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。

- [0075] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、積層板と同様の方法で金属薄帯に樹脂を塗布した材料から、外径40mm内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜いた。このトロイダルを50枚積層した後、窒素雰囲気中で270℃10MPaで30分、熱プレス機で加圧し積層一体化した。さらに、370℃0.05MPaで2hr熱処理した。被覆銅線を1次側25ターン、2次側25ターン施し、交流アンプにより1kHzの電流を印加し、1Tの交番磁界を印加した。熱電対により温度上昇(表面温度と室温との差)を測定した。
- [0076] 結果を表1に示す。
- [0077] (比較例2)
- 磁性金属薄板として、実施例1に使用したハネウエル社製、Metglas:2605TCA(商品名)幅約142mm, 厚み約25 $\mu$ mを用い、実施例1と同様の方法で、4 $\mu$ mの耐熱樹脂(ポリイミド樹脂)を付与した。
- [0078] さらに樹脂をコートして得た磁性基材を50mm角に切断し、50枚積層した後、窒素雰囲気中で270℃、10MPaで30分加圧し積層一体化した後、450℃、800MPaで2hr熱処理した。その後、評価のため、占積率と、JIS H 0505で規定する体積抵抗率を測定した。さらにJIS R 1611で規定される熱伝導率を測定した。
- [0079] 交番磁界を印加したときの温度上昇を測定するため、積層板と同様の方法で金属薄帯に樹脂を塗布した材料から、外径40mm内径25mmのトロイダル形状を金型により打ち抜いた。このトロイダルを50枚積層した後、窒素雰囲気中で270℃10MPaで30分、熱プレス機で加圧し積層一体化した。さらに、450℃、800MPaで2hr熱処理した。
- [0080] 実施例1と同様に温度上昇を測定した。
- [0081] 以上の結果を下表にまとめる。
- [0082] [表1]

	体積抵抗率 $\Omega \text{ cm}$	占積率 %	熱伝導率 $\text{W/mk}$	温度上昇 $^{\circ}\text{C}$
実施例1	$1.2 \times 10^2$	87	3	15
実施例2	$9 \times 10^2$	80	3	5
実施例3	$5 \times 10^2$	91	2.8	8
実施例4	$6 \times 10^2$	95	2.4	20
実施例5	$1.5 \times 10^2$	87	2.9	18
実施例6	$6.7 \times 10^2$	95	2.5	20
実施例7	$1.1 \times 10^2$	88	3.1	17
実施例8	$0.8 \times 10^2$	91	3.3	23
比較例1	$1.2 \times 10^8$	78	0.12	35
比較例2	0.05	93	3.5	30

[0083] 表より、本発明の磁性金属積層体は、本発明の体積抵抗率とすることにより、熱伝導率が高く、また放熱性が高く、温度上昇が低く抑えられていることが明らかになり、磁気コアの小型化、高性能化に著しい効果があることが明らかになった。

#### 産業上の利用可能性

[0084] 本発明は、軟磁性材料が用いられる多くの用途に適用することが可能である。例えば、インダクタンス、チョークコイル、高周波トランス、低周波トランス、リアクトル、パルストランス、昇圧トランス、ノイズフィルター、変圧器用トランス、磁気インピーダンス素子、磁歪振動子、磁気センサ、磁気ヘッド、電磁気シールド、シールドコネクタ、シールドパッケージ、電波吸収体、モータ、発電器用コア、アンテナ用コア、磁気ディスク、磁気応用搬送システム、マグネット、電磁ソレノイド、アクチュエータ用コア、プリント配線基板、磁気コアなどの様々な電子機器や電子部品の機能を支える材料として用いられる。



## 請求の範囲

- [1] 高分子化合物層と磁性金属薄板とからなる磁性基材の積層体であり、金属同士が薄板間で部分的に接触し、積層体の接着面に垂直な方向のJIS H 0505に定義される体積抵抗率が $0.1 \sim 10^8 \Omega \text{cm}$ 未満であることを特徴とする磁性基材の積層体。
- [2] 前記高分子化合物層が前記磁性金属薄板の積層接着面の面積の50%以上を覆い、積層体の接着面に垂直な方向のJIS H 0505に定義される体積抵抗率が $1 \Omega \text{cm}$ 以上 $10^6 \Omega \text{cm}$ 以下である前記請求項1記載の磁性基材の積層体。
- [3] 前記磁性基材の積層体に用いられる磁性基材を構成する磁性金属薄板として、2種類以上の磁性金属薄板が用いられている請求項1記載の磁性基材の積層体。
- [4] 前記磁性金属薄板が非晶質金属、ナノ結晶磁性金属、又は珪素鋼板から選ばれる少なくとも2種以上の金属である請求項1記載の磁性基材の積層体。
- [5] 前記磁性金属薄板が非晶質金属と珪素鋼板である請求項3記載の磁性基材の積層体。
- [6] 高分子化合物層と磁性金属薄板とからなる磁性基材を2枚以上積み重ね、金属同士が薄板間で部分的に接触するように $0.2 \sim 100 \text{MPa}$ で加圧しすることを特徴とする請求項1記載の磁性基材の積層体の製造方法。
- [7] 磁性金属薄板上に高分子化合物を該磁性金属薄板の面積の50%以上塗布した後、乾燥し、得られた磁性金属薄板を打ち抜きして積み上げて塑性変形をさせ、これを $0.2 \sim 100 \text{MPa}$ で加圧しながら加熱して積層一体化して得られる請求項1記載の磁性基材の積層体の製造方法。
- [8] 塑性変形をさせる方法がかしめ工程であることを特徴とする請求項7記載の磁性基材の積層体の製造方法。
- [9] トランス、インダクタ、アンテナのいずれかに用いられることを特徴とする請求項1または3記載の磁性基材の積層体。
- [10] 請求項1または3に記載の磁性基材の積層体が、モータまたは発電機のステータまたはロータの磁気コア材料に用いられていることを特徴とする請求項1または3記載の磁性基材の積層体。